Document made available under the Patent Cooperation Treaty (PCT)

International application number: PCT/JP05/003726

International filing date: 04 March 2005 (04.03.2005)

Document type: Certified copy of priority document

Document details: Country/Office: JP

Number: 2004-061586

Filing date: 05 March 2004 (05.03.2004)

Date of receipt at the International Bureau: 28 April 2005 (28.04.2005)

Remark: Priority document submitted or transmitted to the International Bureau in

compliance with Rule 17.1(a) or (b)



日本 国 特 許 庁 07. 3. 2005

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日 Date of Application:

2004年 3月 5日

出願番号 Application Number:

特願2004-061586

パリ条約による外国への出願 に用いる優先権の主張の基礎 となる出願の国コードと出願 番号

番号
The country code and number of your priority application, to be used for filing abroad under the Paris Convention, is

JP2004-061586

出 願 人

花王株式会社

Applicant(s):

2005年 4月14日

特許庁長官 Commissioner, Japan Patent Office





```
特許願
【書類名】
             P01041603
【整理番号】
              特許庁長官
                      殿
【あて先】
              A61K 7/16
【国際特許分類】
【発明者】
                                花王株式会社研究所内
              東京都墨田区文花2-1-3
  【住所又は居所】
              加藤 和彦
  【氏名】
【発明者】
                                花王株式会社研究所内
              東京都墨田区文花2-1-3
  【住所又は居所】
  【氏名】
              茅根 滋人
【特許出願人】
  【識別番号】
              000000918
  【氏名又は名称】
              花王株式会社
【代理人】
              110000084
  【識別番号】
              特許業務法人アルガ特許事務所
  【氏名又は名称】
              中嶋 俊夫
  【代表者】
【選任した代理人】
              100068700
   【識別番号】
   【弁理士】
              有賀 三幸
   【氏名又は名称】
【選任した代理人】
   【識別番号】
              100077562
   【弁理士】
              高野
                  登志雄
   【氏名又は名称】
【選任した代理人】
   【識別番号】
              100096736
   【弁理士】
   【氏名又は名称】
              中嶋 俊夫
【選任した代理人】
   【識別番号】
              100101317
   【弁理士】
   【氏名又は名称】
              的場 ひろみ
【選任した代理人】
   【識別番号】
              100117156
   【弁理士】
   【氏名又は名称】
              村田 正樹
【選任した代理人】
   【識別番号】
              100111028
   【弁理士】
   【氏名又は名称】
              山本 博人
【手数料の表示】
   【予納台帳番号】
              164232
   【納付金額】
              21,000円
【提出物件の目録】
   【物件名】
              特許請求の範囲 1
   【物件名】
              明細書 1
              要約書 1
   【物件名】
```

【書類名】特許請求の範囲

【請求項1】

次の成分(A)、(B)及び(C):

- (A) 平均粒子径が200μm以下のエリスリトール 30~60質量%
- (B)水 15~30質量%
- (C) アルギン酸ナトリウム、カルボキシメチルセルロースナトリウム、カラギーナン、キサンタンガム、ポリアクリル酸ナトリウム、ヒドロキシエチルセルロース、ヒドロキシプロピルセルロース、ペクチン、トラガントガム、アラビアガム、グアーガム、カラヤガム、ローカストビーンガム、ジェランガム、タマリンドガム、サイリウムシードガム、ポリビニルアルコール、コンドロイチン硫酸ナトリウム及びメトキシエチレン無水マレイン酸共重合体からなる群から選ばれる2種以上の粘結剤 $0.6 \sim 3.0$ 質量%を含有する歯磨き組成物。

【請求項2】

成分(C)が、アルギン酸ナトリウム、カルボキシメチルセルロースナトリウム、カラギーナン及びキサンタンガムからなる群から選ばれる2種以上の粘結剤である請求項1に記載の歯磨き組成物。

【請求項3】

成分(C)が、アルギン酸ナトリウム、カルボキシメチルセルロースナトリウム、カラギーナン、キサンタンガム、ポリアクリル酸ナトリウム、ヒドロキシエチルセルロース、ヒドロキシプロピルセルロース、ペクチン、トラガントガム、アラビアガム、グアーガム、カラヤガム、ローカストビーンガム、ジェランガム、タマリンドガム、サイリウムシードガム、ポリビニルアルコール、コンドロイチン硫酸ナトリウム及びメトキシエチレン無水マレイン酸共重合体からなる群から選ばれる3種以上の粘結剤である請求項1に記載の歯磨き組成物。

【請求項4】

組成物の25 \mathbb{C} における粘度が、 $1500\sim5000$ d P a · s である請求項 $1\sim3$ の何れかに記載の歯磨き組成物。

【請求項5】

粉末として残存するエリスリトールが組成物全体の25質量%以上である請求項 $1\sim4$ の何れかに記載の歯磨き組成物。

【書類名】明細書

【発明の名称】歯磨き組成物

【技術分野】

[0001]

本発明は、清涼感、使用感及び安定性に優れた歯磨き組成物に関する。

【背景技術】

[0002]

歯を磨く目的の多くは、口中を浄化するとともに清涼感を得ることにある。多くの歯磨き組成物に含まれるメントールに代表される清涼感を付与する香料成分は、この目的を果たすためには、必要不可欠なものであるが、近年、油っぽい食事や香辛料を多く使った食事が多くなる傾向があり、より高い清涼感を持った歯磨き組成物が望まれている。

[0003]

清涼感を高める手段として、香料成分の使用量を高めたり、エタノール等の溶剤成分を新たに添加するといった方法があるが、これらの成分の使用量を高めると口中への刺激が強くなったり、泡立ち量が抑制される傾向があるため、磨いたときの使用感を損ねるという問題が生じる。

[0004]

でいて、香料成分やエタノール等の溶剤の使用量を増やすことなく、より高い清涼感を得る歯磨き組成物が望まれている。

[0005]

特許文献1には、エリスリトールなどの吸熱水和反応をする成分を含有し、かつ、水分含量を10重量%以下とした、清涼感に優れる歯磨き組成物が開示されている。

【特許文献1】特開2000-191483号公報

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

[0006]

しかしながら、前記特許文献1記載の歯磨き組成物は、長期保存すると水分や他の液体成分の分離現象が生じることが判明した。

従って、本発明の目的は、清涼感に優れ、かつ安定性の良好な歯磨き組成物を提供する ことにある。

【課題を解決するための手段】

[0007]

そこで本発明者は、まず保存安定性を向上すべく粘結剤の配合量を増加させたところ、この歯磨き組成物は水分が10重量%以下であるため、粘結剤が溶解されず、均一で安定な歯磨き組成物は得られなかった。これに対しては、水分量を増やす手段が考えられるが、水分量を増やすとエリスリトール等の糖アルコールの清涼感が低下してしまい、安定性と良好な清涼感の両立は困難であった。

そこでさらに検討した結果、粘結剤を溶解するために十分な量の水を配合した場合であっても、特定の粒子径のエリスリトールを特定量配合し、さらに特定の粘結剤を2種以上組み合せて配合することにより、エリスリトールの口中での広がり及び口どけを制御し、十分な清涼感が得られることを見出した。そして、発明者らはこの知見に基づき水を十分量含むにもかかわらず十分な清涼感が得られ、また安定性、使用感の良好な歯磨き組成物を完成するに至った。

[0008]

すなわち、本発明は、次の成分(A)、(B)及び(C):

- (A) 平均粒子径が200μm以下のエリスリトール 30~60質量%
- (B) 水 15~30質量%
- (C) アルギン酸ナトリウム、カルボキシメチルセルロースナトリウム、カラギーナン、 キサンタンガム、ポリアクリル酸ナトリウム、ヒドロキシエチルセルロース、ヒドロキシ プロピルセルロース、ペクチン、トラガントガム、アラビアガム、グアーガム、カラヤガ

ム、ローカストビーンガム、ジェランガム、タマリンドガム、サイリウムシードガム、ポリビニルアルコール、コンドロイチン硫酸ナトリウム及びメトキシエチレン無水マレイン酸共重合体からなる群から選ばれる2種以上の粘結剤 0.6~3.0質量%を含有する歯磨き組成物を提供するものである。

【発明の効果】

[0009]

本発明によれば、香料やエタノール等の溶剤の配合量を増加させることなく、優れた清涼感を有し、長期間安定で、かつ保形性が良く糸引き性も少ない使用感の良好な歯磨き組成物が提供できる。

【発明を実施するための最良の形態】

[0010]

エリスリトール(成分(A))の構造としては、Lーエリスリトール、Dーエリスリトール、mesoーエリスリトールの3種の異性体が存在するが、本発明はこれらいずれの構造のものであってもよい。本発明において使用されるエリスリトールとしては、ブドウ糖を発酵させて製造したものが好ましく、日研化学(株)、三菱化学フーズ(株)、セレスタール社製等のものが挙げられる。

本発明におけるエリスリトールは、より高い清涼感を得、かつ口腔内で異物感を生じさせない点から平均粒子径 200μ m以下のものが用いられる。好ましい平均粒子径は $30\sim200\mu$ mであり、より好ましくは $30\sim150\mu$ m、さらに好ましくは $30\sim100\mu$ mである。このような平均粒子径 200μ m以下のエリスリトールは、結晶状のエリスリトールを粉砕して製造することができる。

[0011]

本発明歯磨き組成物中のエリスリトール含有量は、保存安定性及びより高い清涼感を得る観点から $30\sim60$ 質量%が必要であり、より好ましくは $35\sim55$ 質量%、さらに好ましくは $38\sim50$ 質量%である。エリスリトール含有量が30質量%未満では十分な清涼感が得られず、60質量%を超えると組成物中の粉体成分量の割合が多くなるために、製造後徐々に固くなるという問題が生じる。また、組成物のコストも高くなるため、組成物中のエリスリトール含量は60質量%以下にするのが好ましい。

$[0\ 0\ 1\ 2\]$

本発明歯磨き組成物中の水(成分(B))の含有量は、保存安定性及びより高い清涼感を得る観点から、 $15\sim30$ 質量%が必要であり、より好ましくは $15\sim25$ 質量%である。水含有量が15質量%未満では、粘結剤を溶解できず安定性が低下する。一方、30質量%を超えるとエリスリトールも溶解してしまうため十分な清涼感が得ることが難しくなる。

[0013]

本発明に用いられる粘結剤(成分(A))は、アルギン酸ナトリウム、カルボキシメチルセルロースナトリウム、カラギーナン、キサンタンガム、ポリアクリル酸ナトリウム、ヒドロキシエチルセルロース、ヒドロキシプロピルセルロース、ペクチン、トラガントガム、アラビアガム、グアーガム、カラヤガム、ローカストビーンガム、ジェランガム、タマリンドガム、サイリウムシードガム、ポリビニルアルコール、コンドロイチン硫酸ナトリウム及びメトキシエチレン無水マレイン酸共重合体からなる群より選ばれる2種以上である。これらの粘結剤のうちの1種だけを使用した場合には、保形性が十分でなく、また糸引き性を生じ、使用感が悪化する。これらの粘結剤は3種以上を組み合せて使用するのがより好ましい。

[0014]

上記の粘結剤のうち、アルギン酸ナトリウムとしては、(株)キミカ、大日本製薬社製等から市販され、容易に入手可能な分子内マニュロン酸/グルロン酸(M/G比)が $0.5\sim2.5$ のものが好ましい。カルボキシメチルセルロースナトリウムは、ダイセル化学、第一工業製薬社製等から市販され、容易に入手可能なエーテル化度が $0.6\sim2.5$ のものが好ましいが、エーテル化度が $0.8\sim1.5$ のものがより好ましい。カラギーナン

は、カッパ型、ラムダ型、イオタ型の3種の異性体のいずれを用いても良く、ケルコ、MRCポリサッカライド、太陽化学社製等から市販され、容易に入手可能なものを使用できるが、イオタ型、ラムダ型がより好ましい。キサンタンガムは、太陽化学、ケルコ、大日本製薬社製等から市販され、容易に入手可能なものを使用できるが、カルボシキメチルセルロースと併用する場合は、キサンタンガム中に少量混入しているセルラーゼを除去した、セルラーゼ活性の低いキサンタンガムを使用するのが好ましい。

[0015]

これらの粘結剤のうち、アルギン酸ナトリウム、カルボキシメチルセルロースナトリウム、カラギーナン、キサンタンガム、ポリアクリル酸ナトリウム、ヒドロキシエチルセルロース、ヒドロキシプロピルセルロース、トラガントガム、アラビアガム、カラヤガム、ジェランガム、タマリンドガム、及びメトキシエチレン無水マレイン酸共重合体から選ばれる2種以上、特に3種以上を組み合せて使用するのが好ましく、さらに好ましくはアルギン酸ナトリウム、カルボキシメチルセルロースナトリウム、カラギーナン及びキサンタンガムから選ばれる2種又は3種以上である。

[0016]

本発明歯磨き組成物中の粘結剤(C)の含有量は、安定性及び保形性、糸引き性などの使用感の点から $0.6\sim3.0$ 質量%であることが必要であり、好ましくは $0.8\sim2.5$ 質量%であり、さらに好ましくは $1.0\sim2.0$ 質量%である。粘結剤含有量が0.6質量%未満では安定性や使用感が十分でなく、3.0質量%を超えると組成物の粘性が高くなって、口中での広がりが悪くなるため、香料成分の立ちが悪くなり、清涼感が損なわれてしまう。

[0017]

また本発明歯磨き組成物における前記成分(A)、(B)及び(C)の含有量は、清涼感の向上の点から、下記式(1)

[0018]

(B) $\times 0$. $3 + 2.5 \le (A) \cdot \cdot \cdot \cdot (1)$

 $[0\ 0\ 1\ 9\]$

の範囲にあるのが好ましい。より好ましくは、下記式(2)

[0020]

(B) $\times 0$. $3+3.0 \le (A) \cdot \cdot \cdot \cdot (2)$

[0021]

の範囲である。なお、式(1)、(2)において(B)の係数 0.3 はエリスリトールの溶解度(5 $\mathbb C$)が水 1 0 0 g に対して 3 0 g であることから導き出したものである。また、切片である 2 5 又は 3 0 は非水系の歯磨き組成物において清涼感を発揮するために配合することが好ましいエリスリトールの量、つまり、歯磨き組成物中で粉末として残存することが好ましいエリスリトールの量を意味する。

[0022]

また、安定性、保性形及び糸引き性の点から、下記式(3)

[0023]

 $(C) \times 1 \ 0 \le (B) \cdot \cdot \cdot \cdot (3)$

[0024]

の範囲にあるのが好ましい。

[0025]

、本発明の歯磨き組成物には、前記成分の他、例えば発泡剤、発泡助剤、研磨剤、湿潤剤、甘味剤、保存料、酵素、pH調整剤、殺菌剤、薬効成分、顔料、色素、香料等を適宜含有させることができる。

[0026]

この場合、研磨剤としては、沈降性シリカ、シリカゲル、アルミノシリケート、ジルコノシリケート等のシリカ系研磨剤、第2リン酸カルシウム・2水和物及び無水和物、ピロリン酸カルシウム、炭酸カルシウム、アルミナ、水酸化アルミニウム、酢酸マグネシウム

、第3リン酸マグネシウム、ゼオライト、合成樹脂系研磨剤等が好適に用いられる。

[0027]

湿潤剤としては、グリセリン、ソルビトール、プロピレングリコール、ポリエチレングリコール、キシリトール、マルチット、ラクチット、トレハロース等が好適に用いられる

更に、甘味剤としては、サッカリンナトリウム、アスパルテーム、スクラロース、ソーマチン、アセスルファムカリウム、ステビオサイド、ステビアエキス、パラメトキシシンナミックアルデヒド、ネオへスペリジルジヒドロカルコン、ペリラルチン等が挙げられる

[0028]

香料としては、1-メントール、カルボン、アネトール、オイゲノール、リモネン、ペパーミント油、スペアミント油、オシメン、n-アミルアルコール、シトロネロール、αーテルピネオール、サリチル酸メチル、メチルアセテート、シトロネオールアセテート、シネオール、リナロール、エチルリナロール、ワニリン、チモール、レモン油、オレンジ油、セージ油、ローズマリー油、桂皮油、ピメント油、シソ油、丁子油、ユーカリ油等が挙げられる。

[0029]

また、その他の各種有効成分としては、正リン酸のカリウム塩、ナトリウム塩等の水溶性リン酸化合物、アラントインクロルヒドロキシアルミニウム、ヒノキチオール、塩化リゾチーム、グリチルリチン酸及びその塩類、塩化ナトリウム、トラネキサム酸、イプシロンアミノカプロン酸、酢酸dlートコフェロール、アズレン、グリチルレチン酸、銅クロロフィリンナトリウム、グルコン酸銅等の銅化合物、乳酸アルミニウム、塩化ストロンチウム、硝酸カリウム、ベルベリン、ヒドロキサム酸及びその誘導体、トリポリリン酸ナトリウム、ゼオライト、デキストラナーゼ、ムタナーゼ、アミラーゼ、メトキシエチレン、無水マレイン酸共重合体、ポリビニルピロリドン、エピジヒドロコレステリン、ジヒドロコレステロール、クエン酸亜鉛、トウキ、オウバク、チョウジ、ローズマリー、オウゴン、ベニバナ等の抽出物、 α ービサボロール、クロルへキシジン塩類、トリクロサン、塩化セチルピリジニウム、塩化ベンゼトニウム、トリクロロカルバニリド等が挙げられる。

[0030]

本発明の歯磨き組成物は、十分な清涼感を得る観点から、エリスリトールが粉末の状態で分散しているのが望ましい。そのためには、エリスリトールは製造の最終工程に、粉体のままで投入することが好ましい。このような製造方法を用いることで、エリスリトールは水にほとんど溶解せずに、歯磨き組成物中に粉末の状態で存在させることが可能となる。具体的には、例えば、精製水、湿潤剤、粘結剤、香味剤、保存料、研磨剤、発泡剤、甘味剤及び薬効成分等の各成分を処方量計測した後、一定の製造条件に従って混合し、粘結剤を十分に膨潤させ、さらに、研磨剤及び発泡剤、香味剤、粉末状のエリスリトールを加えて脱泡混合し、本発明歯磨き組成物を製造できる。

[0031]

本発明歯磨き組成物の25 Cにおける粘度(ヘリパス型粘度計、ロータC、2.5 r p m、1 分間)は、 $1500\sim5000$ d P a · s、特に $2000\sim4500$ d P a · s、 さらに $2500\sim4000$ d P a · s が好ましい。

【実施例】

[0032]

(1) 歯磨き組成物の調製

表1に示す組成に従って、実施例 $1\sim4$ 及び比較例 $1\sim3$ の練歯磨きを調製した。なお、エリスリトールは最後に添加した。

[0033]

(2) 清涼感の評価

被験者10名(男性5名、女性5名)が、歯ブラシに練歯磨き1gをとり、約2分間自由にブラッシングした。比較例3を基準ハミガキとし、口をすすいだ後のサッパリ感の強さ

を次の基準で評価し清涼感とした。

清涼感の評価基準

- ◎:基準ハミガキよりも明らかにサッパリする
- 〇:基準ハミガキよりもややサッパリする
- ×:基準ハミガキと同程度

なお、各表に示す判定の結果は10名中最も評価が多かったものを示した。

[0034]

(3) 保存安定性の評価

表1に示す練歯磨きを、保存用の歯磨きチューブに詰め、5 \mathbb{C} 、室温、4 0 \mathbb{C} \mathbb{C}

保存安定性の評価基準

- ◎:液体の分離が全く見られない
- ○:液体の分離がわずかに見られる
- ×:明らかに液体の分離が見られる

[0035]

(4) 保形性の評価

チューブから練歯磨きを歯ブラシ全体に絞り出し、10秒間放置した後の歯磨きペーストの状態を、以下の基準で評価した。

保形性の評価基準

- ◎:絞り出したままの状態を保っている
- ○:ほぼ絞り出したままの状態を保っている
- ×:歯ブラシの上から垂れてしまい、絞り出した状態を保てない

[0036]

(5) 糸引き性の評価

チューブから練歯磨きを歯ブラシ全体に絞り出し、ゆっくり引き上げたときの糸引き性を以下の基準で評価した。

糸引き性の評価基準

- ◎:糸引きはなく、歯磨きペーストがきれいに歯ブラシの上にのる
- ○:やや糸引きはあるが、歯磨きペーストがきれいに歯ブラシの上にのる
- ×:かなり糸引きがあり、歯磨きペーストがきれいに歯ブラシの上にのらない

[0037]

【表1】

成分(質量%)		実施例				比較例		
		1	2	3	4	1	2	3
エリスリトール (平均粒子径80 µm)		40	50	60		40	40	
エリスリトール (平均粒子径200μm)					40			
精製水		20	25	18	20	5	20	20_
アルギン酸ナトリウム		0.5	0.3		0.4			
カルボキシメチルセルロースナトリウム		1	0.8	0.8	1.2	1		
カラギーナン			0.4	0.6				
キサンタンガム		0.05			0.05	0.2	0.5	0.5
フッ化ナトリウム		0.21	0.21		0.21			
モノフルオロリン酸ナトリウム				0.7				
ソルビトール		適量			適量			適量
キシリトール				適量				
グリセリン			適量			20	16.2	40
PEG600		5		5	5			5
プロピレングリコール		l	5			30.5	20	
サッカリンナトリウム		0.05	0.05	0.02	0.05			0.05
研磨性シリカ		10	10	5	10	5	2	10
ラウリル硫酸ナトリウム		1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5
トリクロサン			0.1					
塩化ベンゼトニウム				0.01				
酢酸 d 1 - α - トコフェロール			0.1					
β-グリチルレチン酸		0.01						
香料		1.2	1.2	1.2	1.2	1.2	1.2	1.2
計		100	100	100	L	100	100	
涼感		0	0	0	0	0	×	基準
保存安定性	5℃3ヶ月	0	0	0	0	×	0	0
	室温3ヶ月	0	0	0	0	×	0	0
	40℃3ヶ月	0	0	0	0	×	0	0
保形性		0	0	0	0	0	×	0
糸引き性		0	0	0	0	0	×	×

[0038]

表 1 に示したように、実施例 $1\sim3$ の歯磨きでは、高濃度のエリスリトールと適度な水分量、かつ、適切な 2 種以上粘結剤を含有するため、強い清涼感、良好な保存安定性、さらに良好な保形性及び糸引き性防止効果を得ることができた。また、実施例 4 の歯磨きでは、エリスリトールの平均粒子径が 2 0 0 μ mであるため、実施例 $1\sim3$ と比較して、清涼感がやや劣る結果であった。従って、エリスリトールの平均粒子径が 2 0 0 μ mを超えると清涼感が十分でなくなることは明らかである。

[0039]

一方、比較例1では清涼感は良好であったが、水分量が少ないために、保存安定性が悪いという結果であった。また、比較例2の歯磨きでは、1種類の粘結剤しか使用しておらず、十分な清涼感は得られず、また、保形性や糸引き性の点でも十分とはいえなかった。

【書類名】要約書

【要約】

【課題】 香料成分やエタノール等の溶剤の使用量を増やすことなく、より高い清涼感が得られ、かつ、保存安定性にも優れる歯磨き組成物を提供する。

【解決手段】 次の成分(A)、(B)及び(C):

- (A) 平均粒子径が200μm以下のエリスリトール 30~60質量%
- (B)水 15~30質量%
- (C) アルギン酸ナトリウム、カルボキシメチルセルロースナトリウム、カラギーナン、キサンタンガム、ポリアクリル酸ナトリウム、ヒドロキシエチルセルロース、ヒドロキシプロピルセルロース、ペクチン、トラガントガム、アラビアガム、グアーガム、カラヤガム、ローカストビーンガム、ジェランガム、タマリンドガム、サイリウムシードガム、ポリビニルアルコール、コンドロイチン硫酸ナトリウム及びメトキシエチレン無水マレイン酸共重合体からなる群から選ばれる2種以上の粘結剤 $0.6 \sim 3.0$ 質量%を含有する歯磨き組成物。

【選択図】 なし

ページ: 1/E

認定・付加情報

特許出願の番号

特願2004-061586

受付番号

5 0 4 0 0 3 6 3 7 0 5

書類名

特許願

担当官

第五担当上席 0094

作成日

平成16年 3月 8日

<認定情報・付加情報>

【提出日】

平成16年 3月 5日

特願2004-061586

出願人履歴情報

識別番号

[000000918]

1. 変更年月日

1990年 8月24日

[変更理由]

新規登録

住 所

東京都中央区日本橋茅場町1丁目14番10号

氏 名 花王株式会社